

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-272686

(43)Date of publication of application : 26.09.2003

(51)Int.Cl.

H01M 8/04
H01M 8/10
// H02M 7/48

(21)Application number : 2002-078168

(71)Applicant : TOSHIBA INTERNATIONAL FUEL
CELLS CORP

(22)Date of filing : 20.03.2002

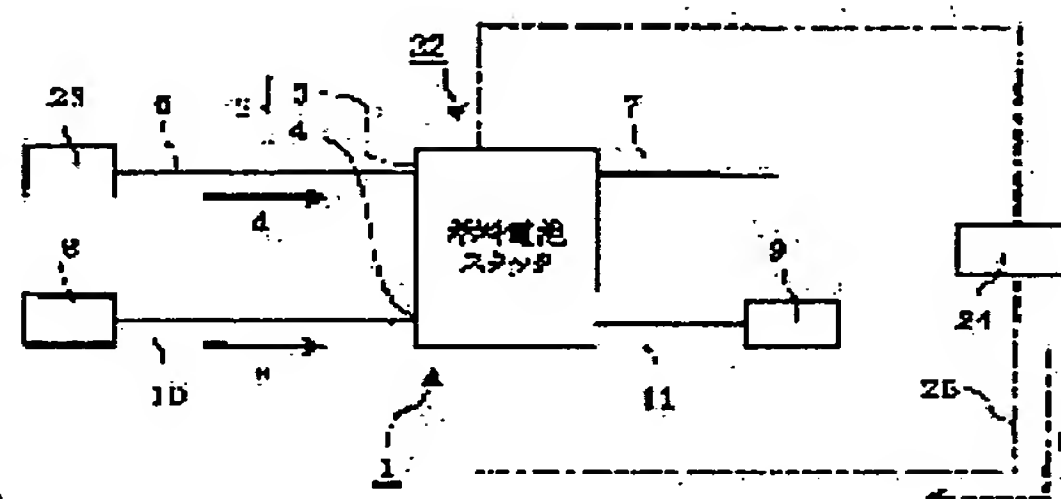
(72)Inventor : CHISAWA HIROSHI
ITO YOZO
KANEKO TAKAYUKI

(54) FUEL CELL REACTIVATION TREATMENT METHOD AND SYSTEM

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a reactivation treatment method and its system for fuel cell that are capable of improving the generation efficiency and realizing a long life of the system.

SOLUTION: The fuel cell is composed of at least a solid polymer electrolyte membrane and a fuel pole 3 and an oxidizer pole 4 arranged interposing the solid polymer electrode membrane, and takes out to the outside as an electric output the electromotive force generated by supplying the fuel and the oxygen respectively to the fuel pole 3 and the oxidizer pole 4. While generation is in stopped state, an inert gas is supplied in d direction to the fuel pole 3 of the fuel cell stack 2 in which the above plural fuel cells are laminated, and a hydrogen-contained gas is supplied in e direction to the oxidizer pole 4 respectively, and a power source 24 is connected to the fuel pole 3 and the oxidizer pole 4 and electric current is flown in f direction by this power source 24.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 25.05.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード [*] (参考)
H 0 1 M 8/04		H 0 1 M 8/04	Z 5 H 0 0 7
8/10		8/10	5 H 0 2 6
// H 0 2 M 7/48		H 0 2 M 7/48	R 5 H 0 2 7

審査請求 未請求 請求項の数15 O L (全 12 頁)

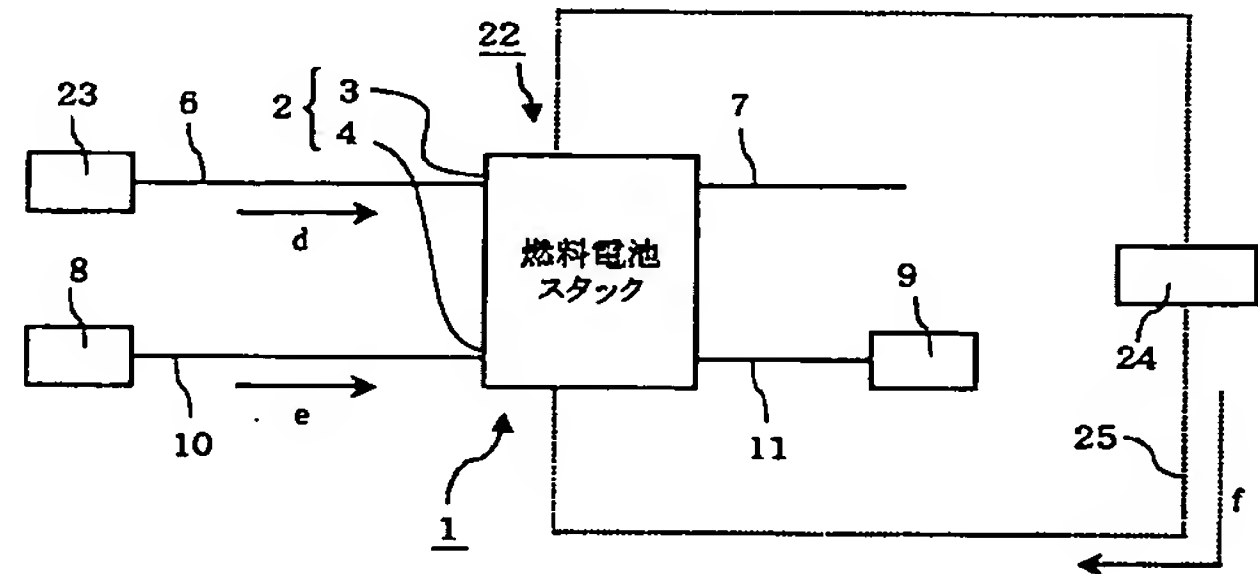
(21)出願番号	特願2002-78168(P2002-78168)	(71)出願人	301060299 東芝インターナショナルフュエルセルズ株式会社 東京都港区芝浦一丁目1番1号
(22)出願日	平成14年 3 月20日 (2002. 3. 20)	(72)発明者	知沢 洋 東京都港区芝浦一丁目1番1号 東芝インターナショナルフュエルセルズ株式会社内
		(72)発明者	伊東 洋三 東京都港区芝浦一丁目1番1号 東芝インターナショナルフュエルセルズ株式会社内
		(74)代理人	100078765 弁理士 波多野 久 (外1名)
		最終頁に続く	

(54)【発明の名称】 燃料電池の再活性化処理方法およびそのシステム

(57)【要約】

【課題】 発電効率の向上やシステムの長寿命化を可能にする燃料電池の再活性化処理方法およびそのシステムを提供すること。

【解決手段】 少なくとも固体高分子電解質膜とこの固体高分子電解質膜を挟んで配置された燃料極3および酸化剤極4とからなり、燃料極3および酸化剤極4にそれぞれ燃料および酸化剤を供給して発生した起電力を電気的出力として外部に取り出す燃料電池において、発電の停止状態で、前記燃料電池を複数積層した燃料電池スタック2の燃料極3にd方向で不活性ガスを、酸化剤極4にe方向で水素含有ガスをそれぞれ供給し、かつ燃料極3および酸化剤極4に電源24を接続し、この電源24によりf方向に電流を流すこと。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 少なくとも固体高分子電解質膜とこの固体高分子電解質膜を挟んで配置された燃料極および酸化剤極とからなり、前記燃料極および前記酸化剤極にそれぞれ燃料および酸化剤を供給して発生した起電力を電気的出力として外部に取り出す燃料電池において、発電の停止状態で、前記燃料電池の酸化剤極に水素含有ガスを供給し、かつ燃料極および酸化剤極に電源を接続し、この電源により燃料極から電源を介して酸化剤極に電流を流すことを特徴とする燃料電池の再活性化処理方法。

【請求項 2】 前記燃料電池の再活性化処理時に、前記燃料電池の燃料極には不活性ガスを供給することを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池の再活性化処理方法。

【請求項 3】 前記燃料電池の再活性化処理時に、前記燃料電池の酸化剤極に供給される水素含有ガスの流量を計測する流量計により、前記燃料電池の燃料極から電源を介して酸化剤極に流れる電流を電気的に制御することを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池の再活性化処理方法。

【請求項 4】 前記燃料電池の再活性化処理時に、前記燃料電池の燃料極から電源を介して酸化剤極に流れる電流値を計測する電流計により、酸化剤極に供給される水素含有ガスの流量を電気的に制御することを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池の再活性化処理方法。

【請求項 5】 前記燃料電池の再活性化処理時に、前記燃料電池の酸化剤極から排気される水素含有ガスを燃料極に供給し、この燃料極から排気される水素含有ガスを再び酸化剤極に供給することで、水素含有ガスを酸化剤極と燃料極とに循環させて利用することを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池の再活性化処理方法。

【請求項 6】 前記燃料電池は固体高分子電解質膜を挟んで配置された燃料極と酸化剤極とを備え、酸化剤供給ラインに水素供給源を設ける一方、前記酸化剤排気ラインに水素含有ガス処理器を備え、前記燃料電池の酸化剤極と燃料極とに電流を流すための電源を電気的に接続することを特徴する燃料電池の再活性化処理システム。

【請求項 7】 前記燃料電池の燃料極に不活性ガスを供給させるために、前記燃料電池の燃料極へ接続された燃料供給ラインに不活性ガス供給源を設けることを特徴とする請求項 6 記載の燃料電池の再活性化処理システム。

【請求項 8】 前記燃料電池の燃料極に燃料供給ラインを、前記燃料電池の酸化剤極に酸化剤供給ラインをそれぞれ接続する一方、前記燃料電池の燃料極および酸化剤極から燃料排気ラインおよび酸化剤排気ラインをそれぞれ接続し、前記燃料供給ラインを分岐させたガス配管を酸化剤供給ラインに接続する一方、前記酸化剤排気ラインから分岐されたガス配管を燃料排気ラインに接続することを特徴とする請求項 6 記載の燃料電池の再活性化システム。

【請求項 9】 前記燃料電池の燃料供給ラインから分岐

させるガス配管が酸化剤供給ラインに接続させる分岐部あるいは結合部に切替弁を設ける一方、前記酸化剤排気ラインから分岐させるガス配管が燃料排気ラインに接続される分岐部あるいは結合部に切替弁を設け、燃料電池の発電時には燃料極で使用する水素含有ガスを再活性化時には酸化剤極に供給し、酸化剤極からの水素含有ガスを燃料極排気ラインから排出するように設定したことを特徴とする請求項 6 記載の燃料電池の再活性化システム。

10 【請求項 10】 前記燃料電池の燃料供給ラインに炭化水素系の原燃料を改質して水素含有ガスを製造する改質装置が具備される一方、酸化剤極に供給される水素含有ガスを、前記燃料電池発電開始前または発電停止後に前記改質装置で製造するようにしたことを特徴とする請求項 6 記載の燃料電池の再活性化システム。

【請求項 11】 前記燃料電池の再活性化処理時に、前記燃料電池の酸化剤極に供給される水素含有ガスの流量を計測する流量計を設け、この流量計にて電源からの電流値を電気的に制御することにより再活性化処理時の水素利用率を所要の値に調整するようにしたことを特徴とする請求項 6 記載の燃料電池の再活性化システム。

20 【請求項 12】 前記燃料電池の再活性化処理時に、電源からの電流値を計測する電流計を設け、この電流計にて前記燃料電池の酸化剤極に供給される水素含有ガスの流量を電気的に制御することにより活性化処理時の水素利用率を所要の値に調整するようにしたことを特徴とする請求項 6 記載の燃料電池の再活性化システム。

【請求項 13】 前記燃料電池の発電時に、前記燃料電池の燃料極および酸化剤極に、それぞれ燃料および酸化剤を供給して発生した起電力を電気的出力として外部に取り出す電気制御装置には逆電流モードが備えられ、この電気制御装置としてインバータが具備されていることを特徴とする請求項 6 記載の再活性化システム。

30 【請求項 14】 前記電気制御装置として直流コンバータが具備されていることを特徴とする請求項 6、13 記載の再活性化システム。

【請求項 15】 前記燃料電池は固体高分子電解質膜を挟んで配置された燃料極と酸化剤極とを備え、前記燃料電池の酸化剤供給ラインに水素供給源を設ける一方、燃料排気ラインと水素含有ガス処理器を備え、酸化剤極と燃料極とに電流を流すための電源を酸化剤極と燃料極とに接続される燃料電池において、酸化剤排気ラインと燃料供給ラインとを接続し、燃料排気ラインから分岐させたガス配管を酸化剤供給ラインに切替弁を介して接続することを特徴とする燃料電池の再活性化システム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は固体高分子型燃料電池の技術に係り、特に発電効率の向上やシステムの長寿命化を可能にした固体高分子燃料電池システムにおける

燃料電池の再活性化処理方法およびそのシステムに関する。

【0002】

【従来の技術】燃料電池システムにおける発電効率の低下を促す主な原因は、経時的な活性化分極、拡散分極、抵抗分極の増大による燃料電池の電圧低下にある。活性化分極、拡散分極の増大は、電極反応に伴う生成水や燃料極からのプロトン (H^+) の移動に付随する移動水による酸化剤極の濡れの進行によって、実際に電極反応が生じている触媒の活性サイト近傍の気孔が徐々に水で閉塞されることに起因している。

【0003】金属イオンで電池が汚染されると、電解質膜のプロトン交換基が金属イオンに置き換わるため、電池電圧が低下する。金属イオンで汚染された燃料電池の起電力を回復させる場合、特開 2001-85037 公報のように、燃料極と酸化剤極に供給していた燃料および酸化剤を、それぞれ酸化剤および燃料に切替えて発電を行うことにより、プロトン交換基を置き換えていた金属イオンが移動することで燃料電池の起電力を回復させる再活性化処理方法が報告されている。

【0004】燃料電池システムにおいて、電圧低下の原因となっている酸化剤極側の活性化分極、拡散分極、抵抗分極の増大を診断する技術として、触媒の電気化学的白金表面積や酸化剤極に供給する酸化剤を空気から酸素に切替えた場合の電位差（酸素ゲイン）を測定することなどがある。

【0005】また、燃料電池の燃料としては、予め合成された純水素を使用する方法や、改質装置を用いて炭化水素系の原燃料から水素含有ガスを製造して使用方法がある。ただし、炭化水素系の原燃料を改質して製造した水素含有ガスには CO_2 や CO 等も含まれるため、燃料極に Pt-Ru 系の合金触媒を用いる方法や、燃料電池に供給される前の燃料ガスに酸素を添加して CO を酸化させて CO 濃度を低下させる方法（米国特許第 4,910,099 号明細書）等を採用し、 CO による電極触媒の被毒、触媒活性の低下、電池性能の劣化を防止している。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】燃料電池システムにおいて、酸化剤極側の活性化分極、拡散分極、抵抗分極の増大による電圧低下が起きた場合、燃料極と酸化剤極に供給していた燃料および酸化剤をそれぞれ酸化剤および燃料に切替えて発電中に再活性化処理を行うと、酸化剤極を閉塞していた気孔中の水の一部が燃料極へ移動するため、一旦は電圧が回復する。

【0007】しかし、発電（逆の極性）では元燃料極（逆の極性時は酸化剤極）に空気を供給することになり、元燃料極に生成水が生じ酸化剤極のミクロポアから十分に水を取り除くことができず、比較的短時間で電池電圧は低下していく。然るに、燃料電池システムにおい

て、酸化剤極側の活性化分極、拡散分極、抵抗分極の増大による電圧低下が起きた場合、燃料電池の極性を逆にして発電中に再活性化処理を行っても、電圧の回復は初期的なものに限定され燃料電池の長寿命化は実現できない。

【0008】また、燃料ガスに CO を含む場合に対応して燃料極に合金触媒を用いた場合には、酸化剤極の触媒として十分には機能しないので満足な電池性能が得られない。したがって、燃料電池の長寿命化を実現するにあたっては CO によるカーボン腐食を防ぐことも大きな課題となる。

【0009】本発明は、このような問題を解決するために提案されたものであり、固体高分子型燃料電池の発電効率の向上やシステムの長寿命化を可能にする燃料電池の再活性化処理方法およびそのシステムを提供することを目的とする。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明に係る燃料電池の再活性化処理方法は、上述した課題を解決するために請求項 1 に記載したように、少なくとも固体高分子電解質膜とこの固体高分子電解質膜を挟んで配置された燃料極および酸化剤極とからなり、前記燃料極および前記酸化剤極にそれぞれ燃料および酸化剤を供給して発生した起電力を電氣的出力として外部に取り出す燃料電池において、発電の停止状態で、前記燃料電池の酸化剤極に水素含有ガスを供給し、かつ燃料極および酸化剤極に電源を接続し、この電源により燃料極から電源を介して酸化剤極に電流を流すことを特徴とする。

【0011】また、本発明の燃料電池の再活性化処理方法は、請求項 2 に記載したように、前記燃料電池の再活性化処理時に、前記燃料電池の燃料極には不活性ガスを供給することを特徴とする。

【0012】さらに、本発明の燃料電池の再活性化処理方法は、請求項 3 に記載したように、前記燃料電池の再活性化処理時に、前記燃料電池の酸化剤極に供給される水素含有ガスの流量を計測する流量計により、前記燃料電池の燃料極から電源を介して酸化剤極に流れる電流を電氣的に制御することを特徴とする。

【0013】また、本発明の燃料電池の再活性化処理方法は、請求項 4 に記載したように、前記燃料電池の再活性化処理時に、前記燃料電池の燃料極から電源を介して酸化剤極に流れる電流値を計測する電流計により、酸化剤極に供給される水素含有ガスの流量を電氣的に制御することを特徴とする。

【0014】さらに、本発明の燃料電池の再活性化処理方法は、請求項 5 に記載したように、前記燃料電池の再活性化処理時に、前記燃料電池の酸化剤極から排気される水素含有ガスを燃料極に供給し、この燃料極から排気される水素含有ガスを再び酸化剤極に供給することで、水素含有ガスを酸化剤極と燃料極とに循環させて利用す

ることを特徴とする。

【0015】また、本発明の燃料電池の再活性化システムは、請求項6に記載したように、前記燃料電池は固体高分子電解質膜を挟んで配置された燃料極と酸化剤極とを備え、酸化剤供給ラインに水素供給源を設ける一方、前記酸化剤排気ラインに水素含有ガス処理器を備え、前記燃料電池の酸化剤極と燃料極とに電流を流すための電源を電氣的に接続することを特徴とする。

【0016】さらに、本発明の燃料電池の再活性化システムは、請求項7に記載したように、前記燃料電池の燃料極に不活性ガスを供給させるために、前記燃料電池の燃料極へ接続された燃料供給ラインに不活性ガス供給源を設けることを特徴とする。

【0017】また、本発明の燃料電池の再活性化システムは、請求項8に記載したように、前記燃料電池の燃料極に燃料供給ラインを、前記燃料電池の酸化剤極に酸化剤供給ラインをそれぞれ接続する一方、前記燃料電池の燃料極および酸化剤極から燃料排気ラインおよび酸化剤排気ラインをそれぞれ接続し、前記燃料供給ラインを分岐させたガス配管を酸化剤供給ラインに接続する一方、前記酸化剤排気ラインから分岐されたガス配管を燃料排気ラインに接続することを特徴とする。

【0018】さらに、本発明の燃料電池の再活性化システムは、請求項9に記載したように、前記燃料電池の燃料供給ラインから分岐させるガス配管が酸化剤供給ラインに接続させる分岐部あるいは結合部に切替弁を設ける一方、前記酸化剤排気ラインから分岐させるガス配管が燃料排気ラインに接続される分岐部あるいは結合部に切替弁を設け、燃料電池の発電時には燃料極で使用される水素含有ガスを再活性化時には酸化剤極に供給し、酸化剤極からの水素含有ガスを燃料極排気ラインから排出するように設定したことを特徴とする。

【0019】また、本発明の燃料電池の再活性化システムは、請求項10に記載したように、前記燃料電池の燃料供給ラインに炭化水素系の原燃料を改質して水素含有ガスを製造する改質装置が具備される一方、酸化剤極に供給される水素含有ガスを、前記燃料電池発電開始前または発電停止後に前記改質装置で製造するようにしたことを特徴とする。

【0020】さらに、本発明の燃料電池の再活性化システムは、請求項11に記載したように、前記燃料電池の再活性化処理時に、前記燃料電池の酸化剤極に供給される水素含有ガスの流量を計測する流量計を設け、この流量計にて電源からの電流値を電氣的に制御することにより再活性化処理時の水素利用率を所要の値に調整するようにしたことを特徴とする。

【0021】また、本発明の燃料電池の再活性化システムは、請求項12に記載したように、前記燃料電池の再活性化処理時に、電源からの電流値を計測する電流計を設け、この電流計にて前記燃料電池の酸化剤極に供給さ

れる水素含有ガスの流量を電氣的に制御することにより再活性化処理時の水素利用率を所要の値に調整するようにしたことを特徴とする。

【0022】さらに、本発明の燃料電池の再活性化システムは、請求項13に記載したように、前記燃料電池の発電時に、前記燃料電池の燃料極および酸化剤極に、それぞれ燃料および酸化剤を供給して発生した起電力を電氣的出力として外部に取り出す電気制御装置には逆電流モードが備えられ、この電気制御装置としてインバータが具備されていることを特徴とする。

【0023】また、本発明の燃料電池の再活性化システムは、請求項14に記載したように、前記電気制御装置として直流コンバータが具備されていることを特徴とする。

【0024】さらに、本発明の燃料電池の再活性化システムは、請求項15に記載したように、前記燃料電池は固体高分子電解質膜を挟んで配置された燃料極と酸化剤極とを備え、前記燃料電池の酸化剤供給ラインに水素供給源を設ける一方、燃料排気ラインと水素含有ガス処理器を備え、酸化剤極と燃料極とに電流を流すための電源を酸化剤極と燃料極とに接続される燃料電池において、酸化剤排気ラインと燃料供給ラインとを接続し、燃料排気ラインから分岐させたガス配管を酸化剤供給ラインに切替弁を介して接続することを特徴とする。

【0025】

【発明の実施の形態】以下、本発明に係る燃料電池の再活性化処理方法およびそのシステムの実施の形態について、添付図面を参照して説明する。

【0026】図1(a)は固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の発電システムの概略的な一実施形態を示すものである。

【0027】固体高分子型燃料電池1には燃料電池スタック2が備えられ、この燃料電池スタック2は燃料極3と酸化剤極4とが配置される。燃料電池スタック2の燃料極3には燃料供給ライン6が接続される一方、燃料極3に供給されて反応したガスを排気する燃料排気ライン7が接続される。

【0028】燃料供給ライン6には燃料供給源としての水素供給源8が備えられる一方、燃料排気ライン7には水素含有ガス処理装置9が備えられる。さらに、燃料電池スタック2の酸化剤極4には酸化剤供給ライン10が接続される一方、酸化剤極4に供給されて反応した水素含有ガスを排気する酸化剤排気ライン11が接続される。加えて、酸化剤供給ライン10には酸化剤供給源12が備えられる。また、燃料電池スタック2の燃料極3と酸化剤極4に電気制御装置13を介して電気配線14が接続される。

【0029】図1(a)において実線矢印a、bは固体高分子型燃料電池1の発電時のガスの流れをそれぞれ示す。また、破線矢印cは固体高分子型燃料電池1の発電

10

20

30

40

50

時の電流の流れを示す。

【0030】固体高分子型燃料電池1の発電では、燃料電池スタック2の燃料極3に水素供給源8から燃料ガスとして水素含有ガスを、および酸化剤極4に酸化剤供給源12から酸素含有ガスをそれぞれ供給し、発生した起電力を電気制御装置13にて回収し出力させる設計である。

【0031】図1(b)は固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池スタックの一例を示すものである。

【0032】図1(b)は図1(a)に示す燃料電池スタック2のA-A矢視方向から切断した断面図である。

【0033】図1(b)において、燃料電池スタック2は、単電池15が複数積層された構成を持ち、単電池15には燃料極3と酸化剤極4とが備わっており、その燃料極3と酸化剤極4に固体高分子電解質膜16が挟持される。その燃料極3および酸化剤極4には、ガス拡散層17と触媒層18とがそれぞれ備わっている。

【0034】さらに、単電池15の燃料極3には燃料ガス流路19が備えられる一方、酸化剤極4には酸化剤ガス流路20が備えられる。

【0035】なお、燃料電池スタック2を構成する複数積層された単電池15は、燃料極3と酸化剤極4とが交互に積層され、燃料極3と酸化剤極4とにそれぞれ供給されるガスを分離するために、個々の単電池15間にセパレータ21が挟持される。

【0036】図1(a)にて燃料供給ライン6から燃料電池スタック2に水素含有ガスが供給されると、図2に示す燃料電池スタック2を構成する個々の単電池15の燃料極3に備えられる燃料ガス流路19に水素含有ガスが供給される。

【0037】同時に、図1(a)にて酸化剤供給ライン10から燃料電池スタック2に酸素供給ガスが供給されると、図2に示す燃料電池スタック2を構成する個々の単電池15の酸化剤極4に備えられる酸化剤ガス流路20に酸素含有ガスが供給される。これにより、固体高分子型燃料電池1の発電が行われる。

【0038】図2は固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの一実施形態を示すものである。

【0039】この実施形態に示された固体高分子型燃料電池1の再活性化システム22は、図1(b)に示す燃料電池スタック2が備えられ、この燃料電池スタック2は燃料極3と酸化剤極4とが配置される。燃料電池スタック2の燃料極3には燃料供給ライン6が接続される一方、燃料極3に供給されて反応したガスを排気する燃料排気ライン7が接続される。

【0040】燃料極3に接続された燃料供給ライン6には不活性ガス供給源23が備えられる。さらに、燃料電池スタック2の酸化剤極4には酸化剤供給ライン10が接続される一方、酸化剤極4に供給されて反応した水素

含有ガスを排気する酸化剤排気ライン11が接続される。加えて、酸化剤供給ライン10には水素供給源8が備えられる一方、酸化剤排気ライン11には水素含有ガス処理装置9が備えられる。

【0041】すなわち、燃料供給ライン6を不活性ガス供給ラインとして利用し、燃料排気ライン7を不活性ガス排気ラインとして利用する一方、酸化剤供給ライン10を燃料供給ラインとして利用し、酸化剤排気ライン11を燃料排気ラインとして利用するものである。

【0042】また、燃料電池スタック2の燃料極3と酸化剤極4に電源24を介して電気配線25が接続される。

【0043】図2において実線矢印d、eは固体高分子型燃料電池1の再活性化処理時のガスの流れをそれぞれ示す。また、破線矢印fは固体高分子型燃料電池1の再活性化処理時の電流の流れを示す。

【0044】この固体高分子型燃料電池1の再活性化システム22は、図1(a)に示す発電を行った固体高分子型燃料電池1において、図2に示すように再活性化処理を行う。

【0045】固体高分子型燃料電池1の再活性化システム22では、燃料電池スタック2の燃料極3に不活性ガス供給源23から不活性ガスを燃料供給ライン6を介して供給し、同時に酸化剤極4に水素供給源8から燃料ガスとして水素含有ガスを酸化剤供給ライン10を介して供給し、電源24から電気配線25を介して燃料電池スタック2の燃料極3と酸化剤極4とに電流を流せるものとし、これにより再活性化処理が実施される。

【0046】例えば 25 cm^2 の固体高分子型燃料電池1を所定時間、例えば7000時間発電させた後、この固体高分子型燃料電池1について、発電の停止状態で再活性化処理が行われる。この再活性化処理時には、電池温度が 25°C となるような条件下にて、図2に示すように、酸化剤極4に例えば水素利用率70%の水素を供給し、燃料極3から電源24を介して酸化剤極4に流す電流密度を例えば 0.35 A/cm^2 として1時間、固体高分子型燃料電池1の再活性化処理を行う。

【0047】図3に固体高分子型燃料電池1の再活性化処理前後の電気化学的な活性度の比較を示す。例えば7000時間発電した燃料電池について再活性化処理前と処理後の固体高分子型燃料電池1の酸化剤極4に供給する空気を酸素に切替た場合の電圧差(酸素ゲイン)と、酸化剤極の触媒層についての電気化学的白金表面積を示したものである。さらに燃料電池の再活性化処理前後の比較のために運転初期のデータも示す。

【0048】この再活性化処理によって酸化剤極4のガス拡散性の改善を示す酸素ゲインの減少と、酸化剤極4の触媒活性の改善を示す電気化学的白金表面積の増加が確認できる。酸素ゲインに関しては運転(発電)初期のデータに迫るほど回復する。すなわち、酸化剤極4の触

媒層の一次粒子で形成されるミクロポアを閉塞している水を十分取り除くことができることを示している。

【0049】図4は燃料電池の電圧降下と再活性化処理の効果を示すデータ図である。所要時間、例えば7000時間発電した固体高分子型燃料電池1に再活性化処理を行った後さらに、所要時間、例えば15000時間まで発電し、固体高分子型燃料電池1における電圧の経時変化を示したものである。

【0050】7000時間後の再活性化処理によって固体高分子型燃料電池1の電圧は、ほぼ運転（発電）初期の電圧まで回復し、元の劣化電圧に戻るまでに同様に約7000時間程度経過している。すなわち再活性化処理により、酸化剤極のガス拡散性の改善を示す酸素ゲインの減少と、電気化学的白金表面積の増加の増加を促し、燃料電池の電圧の低下を防止または回復させることによって、固体高分子型燃料電池システムの発電効率の向上やシステムの長寿命化を可能にすることができる。

【0051】図5は固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの他の実施形態を示すものである。

【0052】図5において破線矢印cは固体高分子型燃料電池1の発電時の電流の流れ、破線矢印fは固体高分子型燃料電池1の再活性化処理時の電流の流れをそれぞれ示す。なお、図1（a）に付される固体高分子型燃料電池1の再活性化システムに用いられる部材と同じ部材には同一の符号を付して説明を省略する。

【0053】燃料電池スタック2の燃料極3および酸化剤極4には燃料供給ライン6および酸化剤供給ライン10がそれぞれ接続される。燃料供給ライン6からバイパスライン29、切替弁30を介して酸化剤供給ライン10に接続される。

【0054】さらに、燃料電池スタック2の燃料極3および酸化剤極4には燃料排気ライン7および酸化剤排気ライン11がそれぞれ接続される。酸化剤排気ライン11の途中に切替弁31が設けられ、酸化剤排気ライン11は切替弁31およびバイパスライン32を介して燃料排気ライン7に接続される。

【0055】また、燃料電池スタック2の燃料極3と酸化剤極4に電源24を介して電気配線25が接続される。

【0056】固体高分子型燃料電池1の再活性化システム22Aにおいて、再活性化時に酸化剤極4に供給される水素含有ガスは、水素供給源8から水素供給ライン6から分岐し、切替弁30から酸化剤極4へ供給される。一方、酸化剤極4から排気された水素含有ガスは、酸化剤排気ライン11の切替弁31を介して燃料排気ライン7へ合流し、水素含有ガス処理装置9へ送られ処理される。

【0057】なお、電源24から電気配線25を介して燃料電池スタック2の燃料極3と酸化剤極4とに電流を

流せるものとし、これにより再活性化処理が実施される。

【0058】その際、酸化剤極4に供給する水素含有ガスは固体高分子型燃料電池1の発電時に使用する水素供給源8を利用でき、さらに、酸化剤極4から排気される水素含有ガスの処理は固体高分子型燃料電池1の発電時に使用する水素含有ガス処理装置9を利用できる。

【0059】このため、固体高分子型燃料電池1の発電システムのガス配管と再活性化システムのガス配管を同一のシステム内に納めることができ、燃料電池の活性化処理のための燃料電池発電システム以外の水素供給源8および水素含有ガス処理装置9を準備することなく、酸化剤極4のガス拡散性の改善を示す酸素ゲインの減少と、電気化学的白金表面積の増加の増加を促し、燃料電池の電圧の低下を防止または回復させることによって、固体高分子型燃料電池システムの発電効率の向上やシステムの長寿命化を可能にすることができる。

【0060】なお、図5に示された固体高分子型燃料電池1の再活性化処理システム22Aに、燃料ガス供給源としての水素供給源8から供給される燃料を改質する改質装置33を備えてもよい。改質装置33は燃料ガスを触媒を用いて改質するもので、構成する触媒は高温で改質性能を効果的に発揮する。一方、改質装置33の起動、すなわち昇温に時間を費やすことに配慮し、改質装置33の各触媒は適切な温度条件に維持されている。然るに固体高分子型燃料電池1の発電開始直前、または発電停止直後に固体高分子型燃料電池1の再活性化処理を実施することが望ましい。

【0061】この場合、燃料電池発電開始直前または発電停止直後のタイミングで酸化剤極4に水素含有ガスを供給するので、改質装置33の各触媒の設定温度、流量等が最適条件で維持されており、通常再活性化処理システム起動時に触媒の昇温等に必要な起動時間を待たずに、酸化剤極4に水素含有ガスを供給することができる。

【0062】図6は固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの第3実施形態を示すものである。

【0063】この実施形態に示された固体高分子型燃料電池1の再活性化システム22Bは、水素含有ガスの流量を計測する流量計34と電源電流の制御装置35とを備えた場合の系統図である。

【0064】図6において破線矢印fは固体高分子型燃料電池1の再活性化処理の際の電流の流れを示す。なお、図2に付される固体高分子型燃料電池1の再活性化システムに用いられる部材と同じ部材には同一の符号を付して説明を省略する。

【0065】さらに、水素供給源8の下流側には流量計34が設置され、この流量計34で水素含有ガスの流量値を計測する。その流量計34から電気配線36を介し

て制御装置 35 が接続される。

【0066】この固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システム 22B は、図 1 (a) に示す発電を行った固体高分子型燃料電池 1 において、図 6 に示すように再活性化処理を行う。

【0067】固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システム 22B において、燃料電池スタック 2 の酸化剤極 4 に水素含有ガスが供給される。この酸化剤極 4 に供給される水素含有ガスは、水素供給源 8 から供給され、反応した後、さらにその酸化剤極 4 から排気される。この水素含有ガスは水素含有ガス処理装置 9 に送られ処理される。また、酸化剤供給ライン 10 に備えられた流量計 34 で水素含有ガスの流量を計測しており、この流量計 34 の指示流量値によって、燃料電池スタック 2 の燃料極 3 から電源 24 を介して酸化剤極 4 へ流す電源 24 からの電流値を、制御装置 35 により制御できるように構成され、この制御装置 35 により再活性化処理が実施される。

【0068】図 7 に燃料電池の再活性化処理有無による発電時間と燃料電池スタックの平均電圧の関係を示す。

【0069】ここで双方の燃料電池スタックとも約 700 時間毎に発電停止を行い、本実施の形態の燃料電池スタック 2 には停止時に酸化剤極 4 に供給した水素の利用率が例えば 70% となるように、燃料極 3 から電源 24 を介して酸化剤極 4 に電流を流す上述の再活性化処理を 20 分間実施する。

【0070】図 7 に示すように従来の燃料電池スタック 2 と比較して固体高分子型燃料電池 1 の電圧の低下を抑制できる。

【0071】すなわち、固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システム 22B によれば、電池性能を経時的に低下させる原因となっている酸化剤極 4 のガス拡散性の悪化および触媒有効表面積の低下を防止し、固体高分子型燃料電池 1 の電圧の低下を防止させることによって、発電効率の向上やシステムの長寿命化を可能にできる。

【0072】図 8 は固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの第 4 実施形態を示すものである。

【0073】この実施形態に示された固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システム 22C は、電源電流を計測する電流計 37 と水素含有ガスの流量制御装置 38 とを備えた場合の系統図である。

【0074】図 8 において破線矢印 f は固体高分子型燃料電池 1 の再活性化処理の際の電流の流れを示す。なお、図 2 に付される固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システムに用いられる部材と同じ部材には同一の符号を付して説明を省略する。

【0075】さらに、電源 24 には電流計 37 が設置され、この電流計 37 で燃料極 3 から電源 24 を介して酸化剤極 4 に流れる電流値を計測する。その電流計 37 か

ら電気配線 39 を介して流量制御装置 38 が接続される。

【0076】この固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システム 22C は、図 1 (a) に示す発電を行った固体高分子型燃料電池 1 において、図 8 に示すように再活性化処理を行う。

【0077】固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システム 22C において、電源 24 には、燃料極 3 から電源 24 を介して酸化剤極 4 に流す電流値を計測する電流計 37 が備えられ、電流計 37 はその指示電流値によって、燃料ガス供給源としての水素供給源 8 から酸化剤極 4 に供給される水素流量を制御できる流量制御器 38 が接続される。これにより再活性化処理を実施する。

【0078】図 6 および図 8 の何れの場合でも酸化剤極 4 に供給される水素含有ガスを所定の水素利用率に維持することが可能なので、 $C + 2H_2O \rightarrow CO_2 + 4H^+ + 4e^-$ という反応によるカーボン腐食を防ぐことができ、固体高分子型燃料電池システムの長寿化を実現できる。

【0079】図 9 は、固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの第 5 の実施形態を示すものである。

【0080】この実施形態に示された固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システム 22D は電気制御装置 40 を備えた場合の系統図を示す。

【0081】図 9 において破線矢印 c は固体高分子型燃料電池 1 の発電時の電流の流れ、破線矢印 f は固体高分子型燃料電池 1 の再活性化処理時の電流の流れをそれぞれ示す。なお、図 5 に付される固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システムの部材と同じ部材には同一の符号を付して説明を省略する。

【0082】この固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システム 22D は、図 9 および図 10 (a) に示すように、電気制御装置 40 を構成するインバータ 41 を燃料電池スタック 2 に電氣的に接続し、さらにインバータ 41 の交流側には系統交流電源 42 が接続され、燃料電池の発電時には系統交流電源 42 との連系運転が行われている。

【0083】ここでインバータ 41 に燃料電池スタック 2 からの直流電力を交流電力に変換する機能、および系統交流電源 42 からの交流電力を直流電力に変換する機能を持たせると、電気制御装置 40 を逆電流モードにして系統交流電源 42 からの交流電力をインバータ 41 で変換することで、再活性化処理に必要な直流電力の電源を得ることができる。

【0084】また、図 10 (a) の変形例として図 10 (b) に示すように、直流コンバータ 43 を備えてもよい。図 10 (b) は電気制御装置 40 として直流コンバータ 43 を具備した場合の系統図である。固体高分子型燃料電池 1 の基本的な構成は、図 9 に示される固体高分

子型燃料電池 1 と同様であるので説明を省略する。

【0085】電気制御装置 40 を構成する直流コンバータ 43 を介して 24 V の二次電池 44 を燃料電池スタック 2 に電氣的に接続する。ここで直流コンバータ 43 には燃料電池スタック 2 の発電によって得られる直流電力を所定の電圧に変換し、二次電池 44 を充電する機能と、二次電池 44 の放電により得られる直流電力を所定の電圧に変換する機能を有する。これらの機能を持たせると、逆電流モードにして直流コンバータ 43 で変換することで、再活性化処理に必要な直流電力の電源を得ることができる。

【0086】図 9 の電気制御装置 40 として例に挙げた、図 10 (a) および図 10 (b) 何れの場合も、固体高分子型燃料電池 1 における発電システムの電気配線と再活性化システムの電気配線を同一のシステム内に納めることができ、固体高分子型燃料電池 1 の再活性化処理のための燃料電池システム以外の電源を準備することなく、酸化剤極 4 のガス拡散性の改善を示す酸素ゲインの減少と、電気化学的白金表面積の増加の増加を促し、燃料電池の電圧の低下を防止または回復させることによって、固体高分子型燃料電池システムの発電効率の向上やシステムの長寿命化を可能にすることができる。

【0087】図 11 は、固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの第 6 の実施形態を示すものである。

【0088】図 11 において破線矢印 f は固体高分子型燃料電池 1 の再活性化処理時の電流の流れを示す。

【0089】この実施形態に示される固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システム 22 E は、図 1 (b) に示す燃料電池スタック 2 を備えており、この燃料電池スタック 2 は燃料極 3 と酸化剤極 4 とが配置される。燃料電池スタック 2 の燃料極 3 には燃料供給ライン 6 が接続される一方、燃料極 3 に供給されて反応したガスを排気する燃料排気ライン 7 が接続される。さらに、燃料電池スタック 2 の酸化剤極 4 には酸化剤供給ライン 10 が接続される一方、酸化剤極 4 に供給されて反応したガスを排気する酸化剤排気ライン 11 が接続される。加えて、酸化剤供給ライン 10 には水素供給源 8 が備えられる一方、燃料排気ライン 7 には水素含有ガス処理装置 9 が備えられる。

【0090】さらに、酸化剤排気ライン 11 は燃料供給ライン 6 と接続される一方、燃料排気ライン 7 は切替弁 45、バイパスライン 46、切替弁 30 を介し酸化剤供給ライン 10 に接続される。なお、バイパスライン 46 には昇圧ブロア 47 が具備されている。

【0091】また、燃料電池スタック 2 の燃料極 3 と酸化剤極 4 に電源 24 を介して電気配線 25 が接続される。

【0092】この固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システム 22 E は、図 1 (a) に示す発電を行った固体高

分子型燃料電池 1 において、図 11 に示すように再活性化処理を行う。

【0093】この固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システム 22 E は、図 11 に示すように、水素含有ガスが水素供給源 8 から切替弁 30 を介して酸化剤極 4 に供給されてここで反応する。

【0094】一方、酸化剤極 4 から排気された水素含有ガスは、酸化剤排気ライン 11 から燃料供給ライン 6 を経て燃料極 3 に供給される。さらに、燃料極 3 から排気される水素含有ガスは燃料排気ライン 7 から分岐して、切替弁 45 を介して水素含有ガス処理装置 9 で処理される。

【0095】また、燃料電池スタック 2 の燃料極 3 から排気された水素含有ガスは、切替弁 45 から接続されたバイパスライン 46 を経て切替弁 30 を介して再び酸化剤極 4 に供給され、電源 24 から電気配線 25 を介して燃料電池スタック 2 の燃料極 3 と酸化剤極 4 とに電流を流せるものとし、これにより再活性化処理が実施される。

【0096】さらに、昇圧ブロワ 47 を駆動することによって、再活性化処理に酸化剤極 4 で必要な水素含有ガスが循環され、過剰な水素含有ガスを使用することなく、酸化剤極 4 のガス拡散性の改善を示す酸素ゲインの減少と、電気化学的白金表面積の増加の増加を促し、燃料電池の電圧の低下を防止または回復させることによって、固体高分子型燃料電池システムの発電効率の向上やシステムの長寿命化を可能にすることができる。

【0097】図 12 は固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの第 7 の実施形態を示すものである。

【0098】この実施形態に示される固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システム 22 F は、図 11 に示す固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システム 22 E を複数並列に接続した構成であるので、図 11 に付される固体高分子型燃料電池 1 の再活性化システムに用いられる部材と同じ部材には同一符号を付して説明を省略する。

【0099】このような構成においても同様な効果が確認できる。

【0100】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、固体高分子型燃料電池システムの燃料電池の性能を経時的に低下させる原因となっている酸化剤極のガス拡散性の悪化および触媒有効表面積の低下を防止または改善することができ、カーボン腐食を防ぐことも可能なので、燃料電池の発電効率の向上やシステムの長寿命化を実現する燃料電池システムを得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 (a) は本発明に係る固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の発電システムの一例を示す概略的な系統図、(b) は固体高分子型燃料電池システム

における燃料電池スタックの一例を示す図。

【図 2】本発明に係る固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの一実施形態を示す概略的な系統図。

【図 3】再活性化処理前後における燃料電池の電気化学的な活性度の比較を示す図。

【図 4】燃料電池の電圧降下と再活性化処理の効果を示す図。

【図 5】本発明に係る固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの他の実施形態を示す概略的な系統図。

【図 6】本発明に係る固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの第 3 実施形態を示す概略的な系統図。

【図 7】再活性化処理有無による発電時間と燃料電池スタックの平均電圧の関係を示す図。

【図 8】本発明に係る固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの第 4 実施形態を示す概略的な系統図。

【図 9】本発明に係る固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの第 5 実施形態を示す概略的な系統図。

【図 10】(a) は電気制御装置としてインバータを具備した場合、(b) は電気制御装置として直流コンバータを具備した場合をそれぞれ示す系統図。

【図 11】本発明に係る固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの第 6 実施形態を示す概略的な系統図。

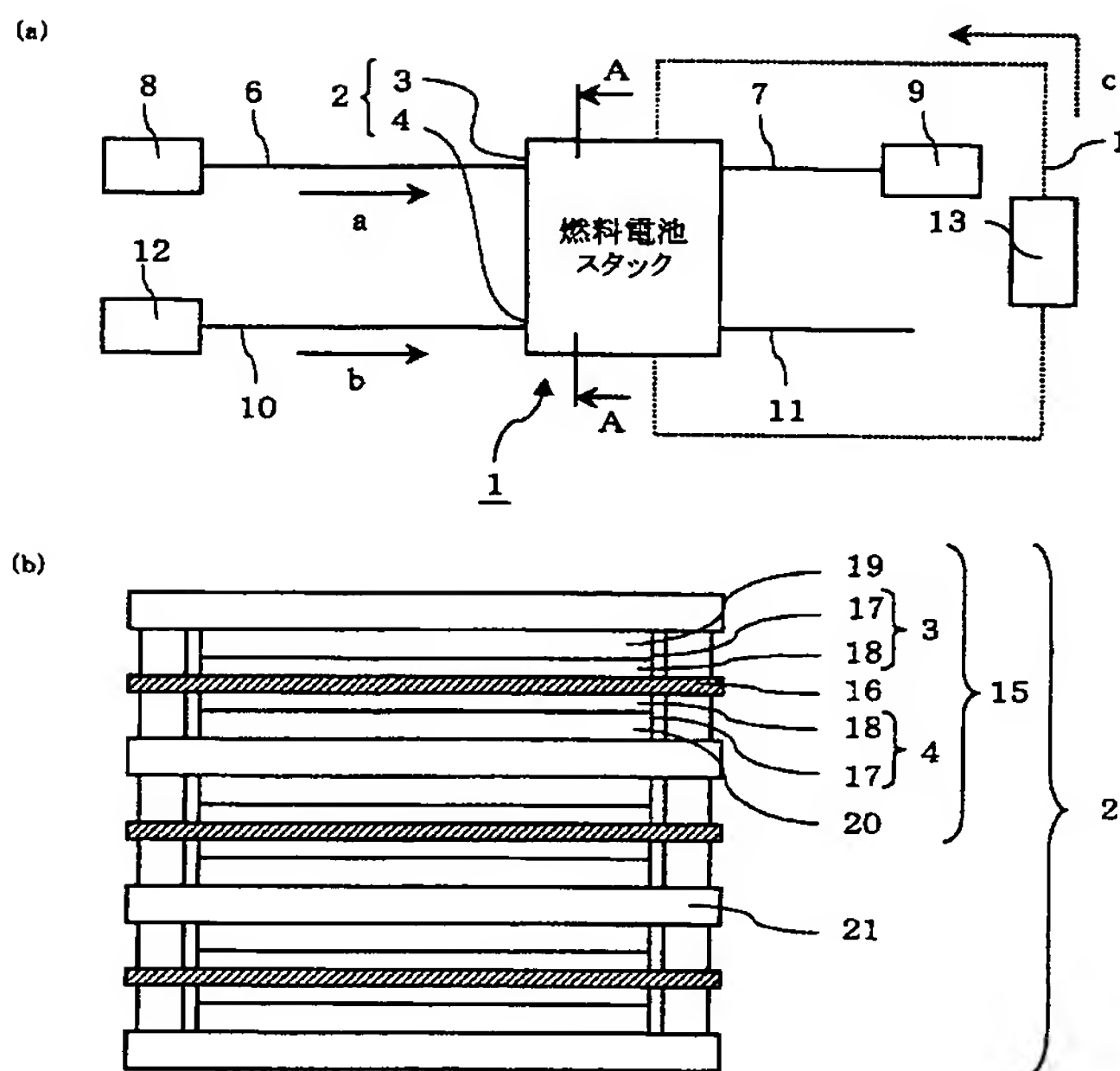
【図 12】本発明に係る固体高分子型燃料電池システムにおける燃料電池の再活性化システムの第 7 実施形態を示す概略的な系統図。

【符号の説明】

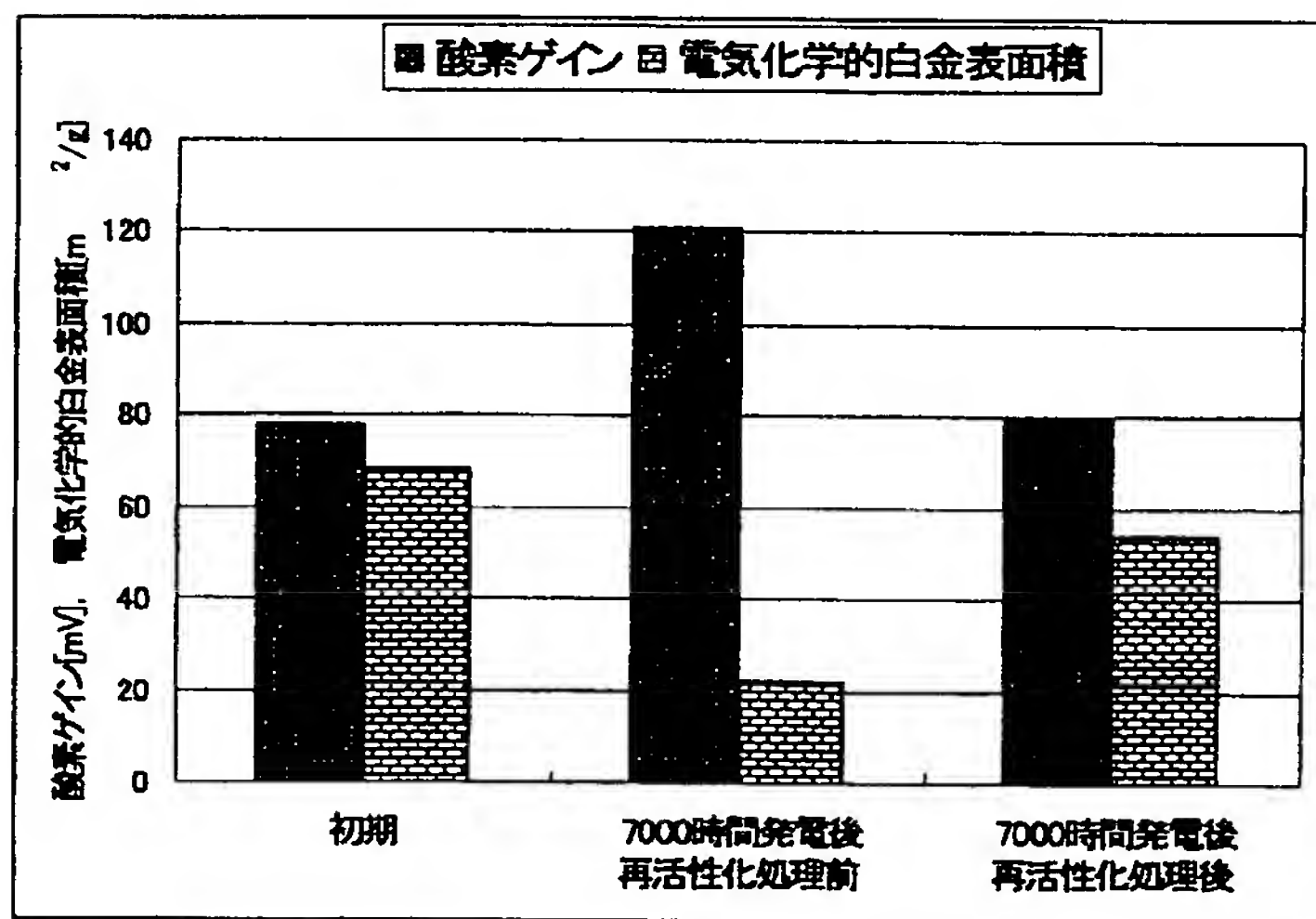
- 1 燃料電池
- 2 燃料電池スタック
- 3 燃料極
- 4 酸化剤極
- 6 燃料供給ライン
- 7 燃料排気ライン
- 8 水素供給源
- 9 水素含有ガス処理装置
- 10 酸化剤供給ライン
- 11 酸化剤排気ライン
- 12 酸化剤供給源
- 13 電気制御装置
- 14 電気配線
- 15 単電池
- 16 固体高分子電解質膜

- 17 ガス拡散層
- 18 触媒層
- 19 燃料ガス流路
- 20 酸化剤ガス流路
- 21 セパレータ
- 22 一実施形態における固体高分子型燃料電池の再活性化システム
- 22A その他の実施形態における固体高分子型燃料電池の再活性化システム
- 22B 第 3 実施形態における固体高分子型燃料電池の再活性化システム
- 22C 第 4 実施形態における固体高分子型燃料電池の再活性化システム
- 22D 第 5 実施形態における固体高分子型燃料電池の再活性化システム
- 22E 第 6 実施形態における固体高分子型燃料電池の再活性化システム
- 22F 第 7 実施形態における固体高分子型燃料電池の再活性化システム
- 23 不活性ガス供給源
- 24 電源
- 25 電気配線
- 29 バイパスライン
- 30 切替弁
- 31 切替弁
- 32 バイパスライン
- 33 改質装置
- 34 流量計
- 35 制御装置
- 36 電気配線
- 37 電流計
- 38 流量制御装置
- 39 電気配線
- 40 電気制御装置
- 41 インバータ
- 42 系統交流電源
- 43 直流コンバータ
- 44 二次電池
- 45 切替弁
- 46 バイパスライン
- 47 昇圧プロア
- a 燃料電池の発電時のガスの流れ
- b 燃料電池の発電時のガスの流れ
- c 燃料電池の発電時の電流の流れ
- d 燃料電池の再活性化時のガスの流れ
- e 燃料電池の再活性化時のガスの流れ
- f 燃料電池の再活性化時の電流の流れ

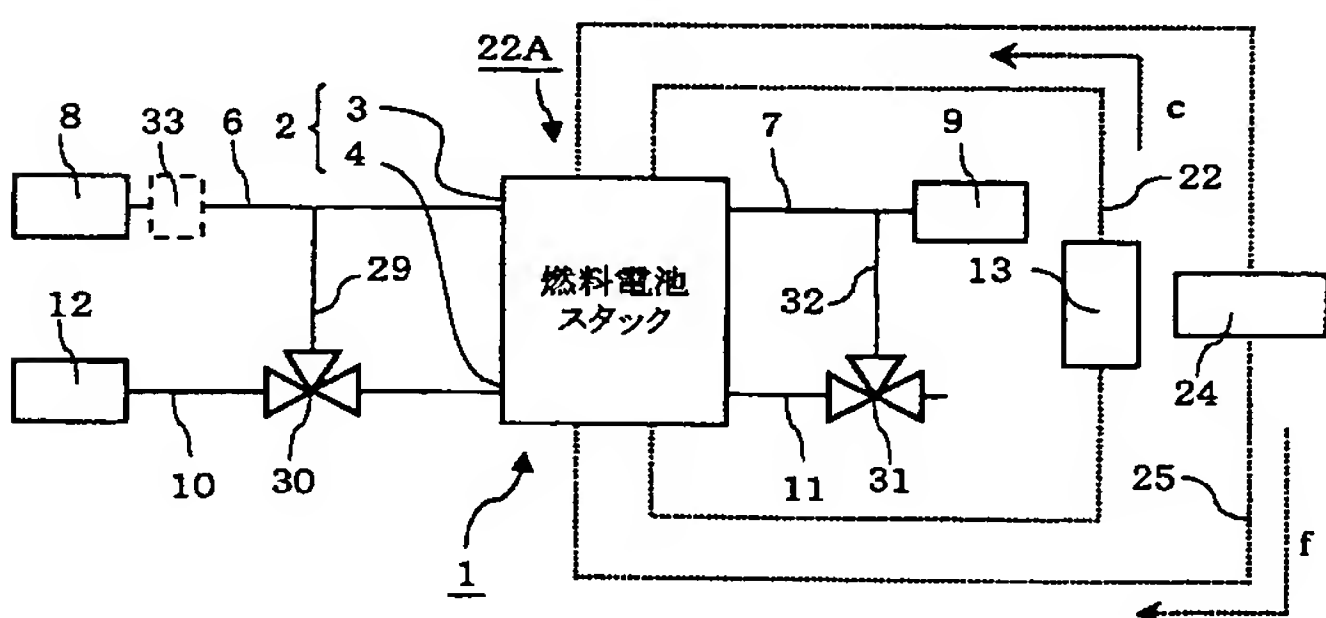
【図1】



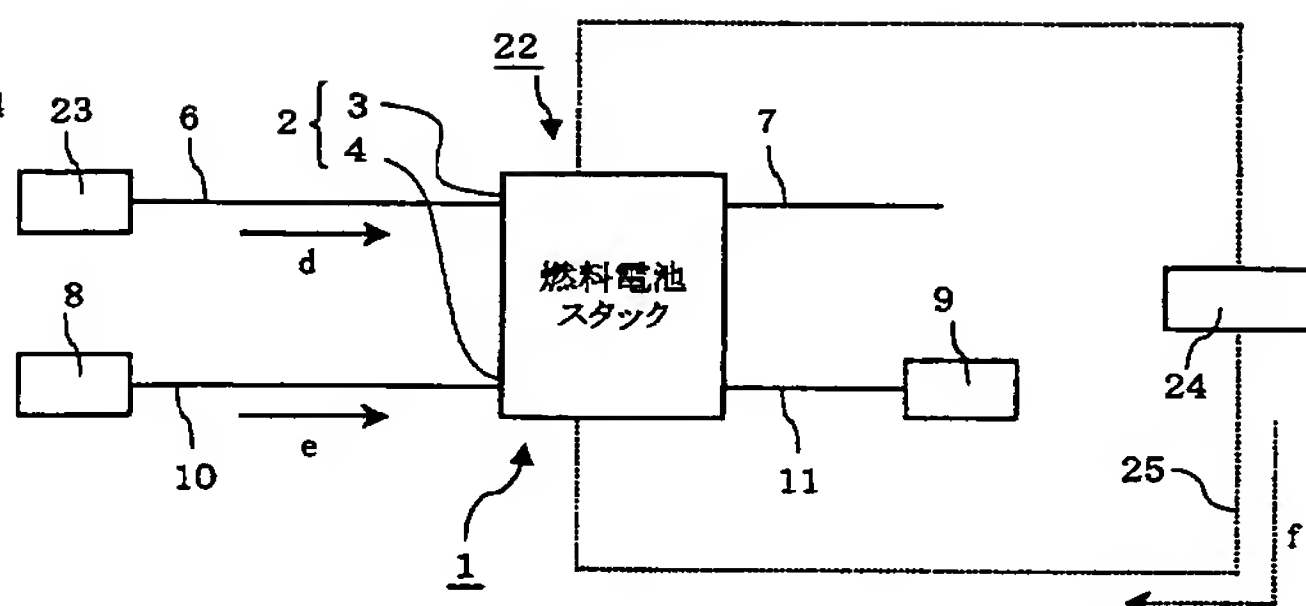
【図3】



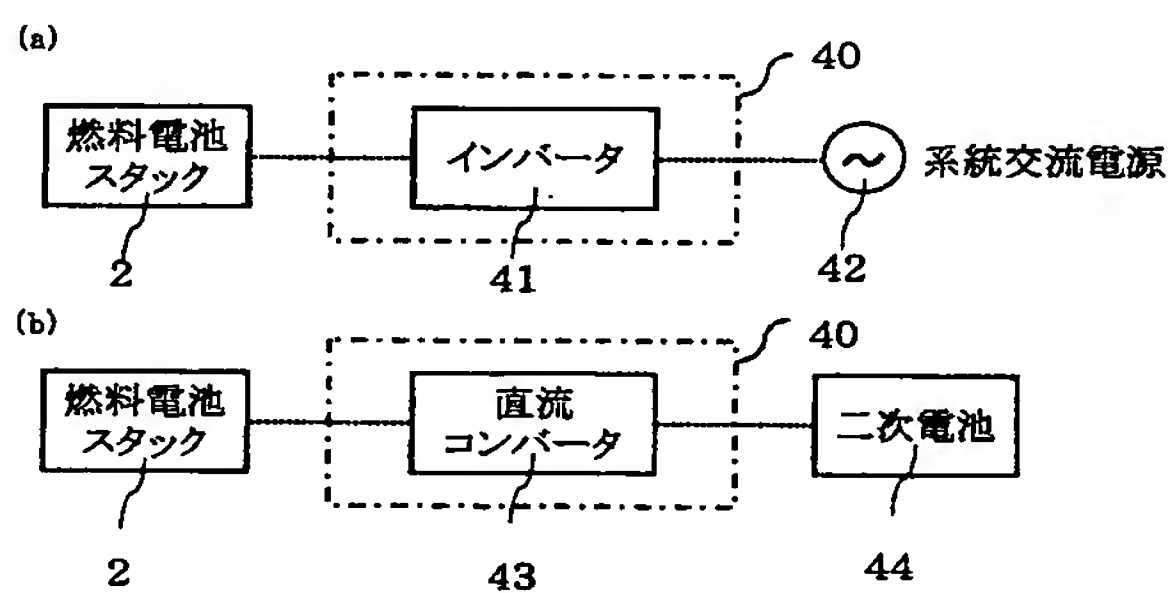
【図5】



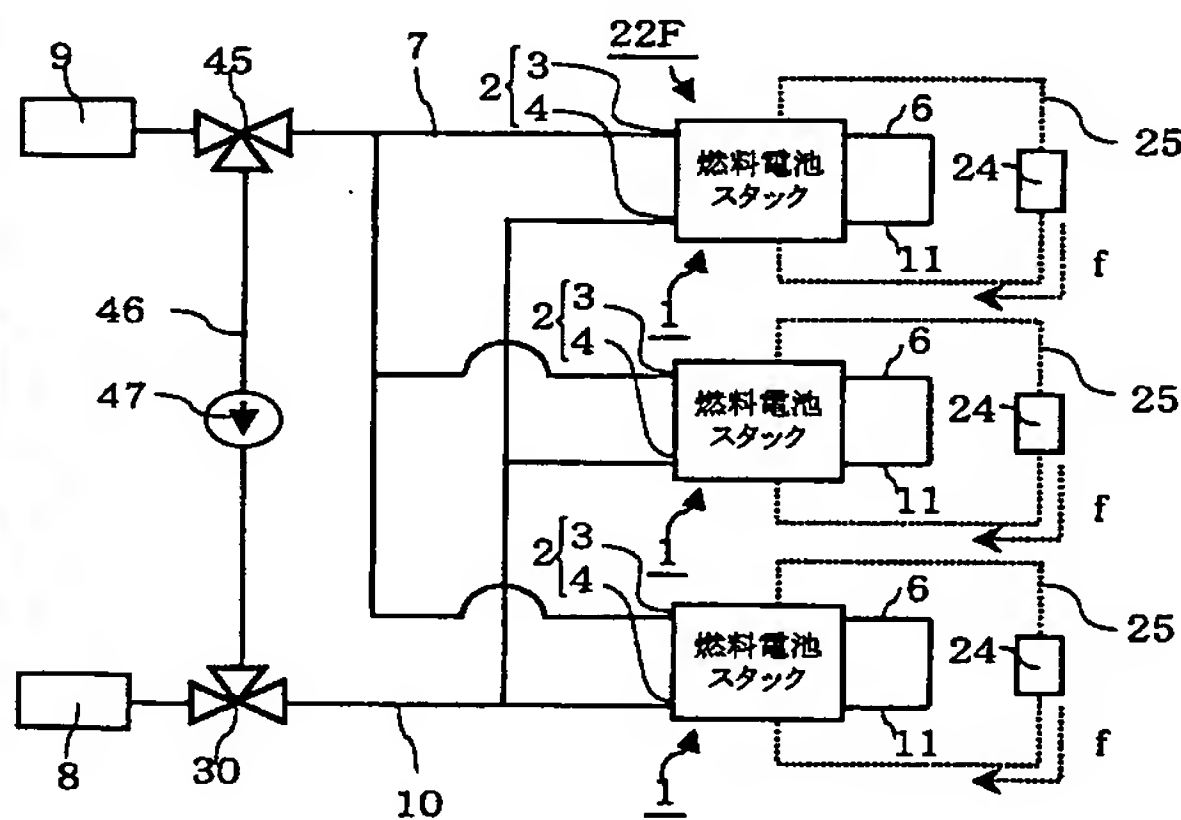
【図2】



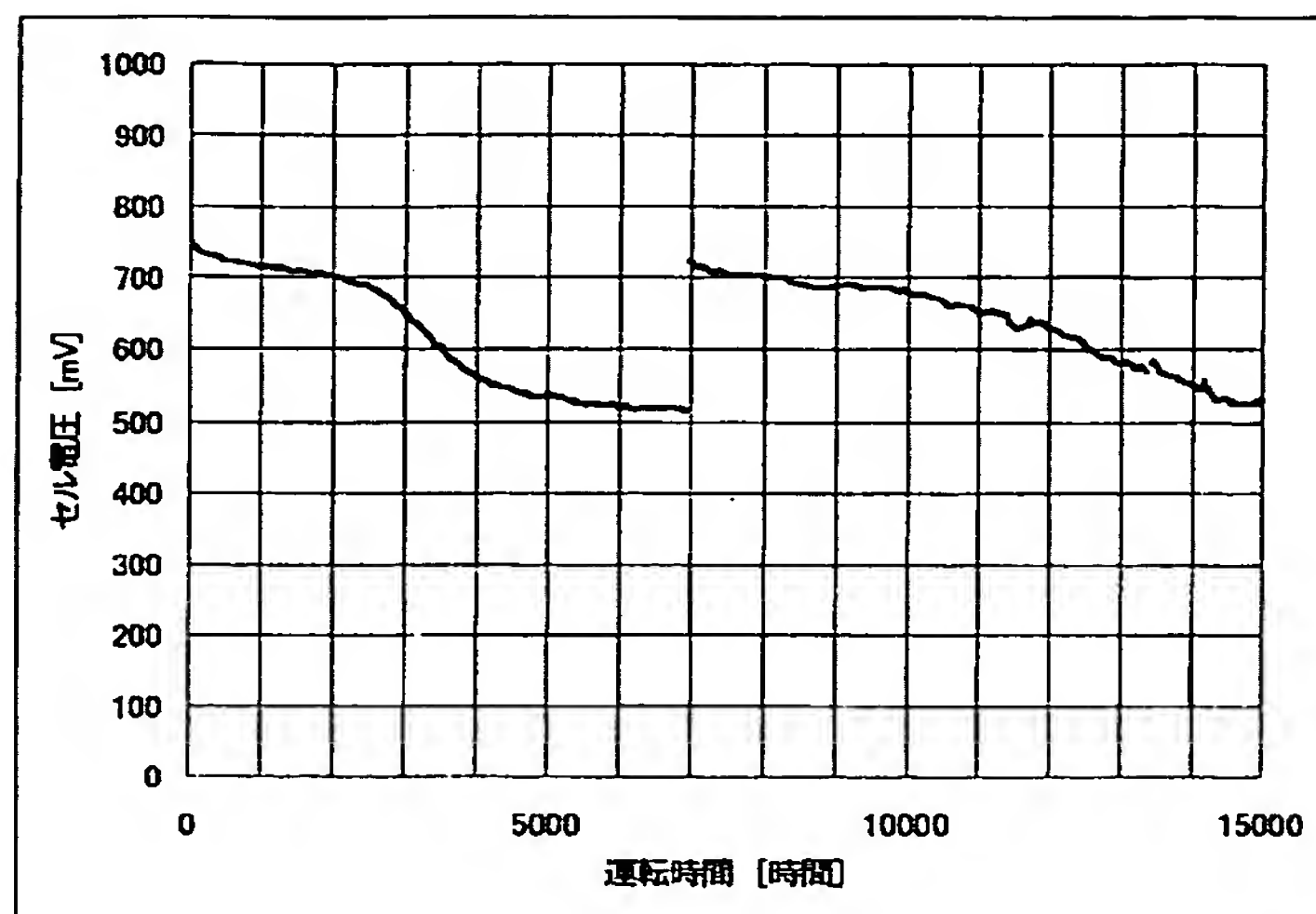
【図10】



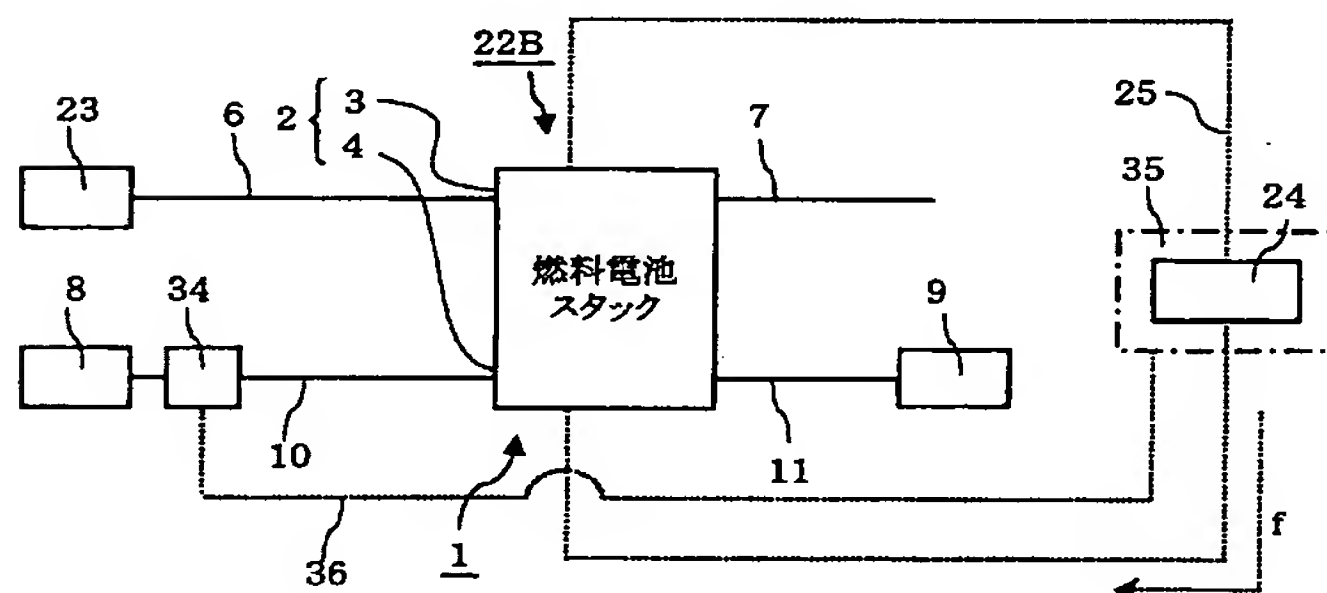
【図12】



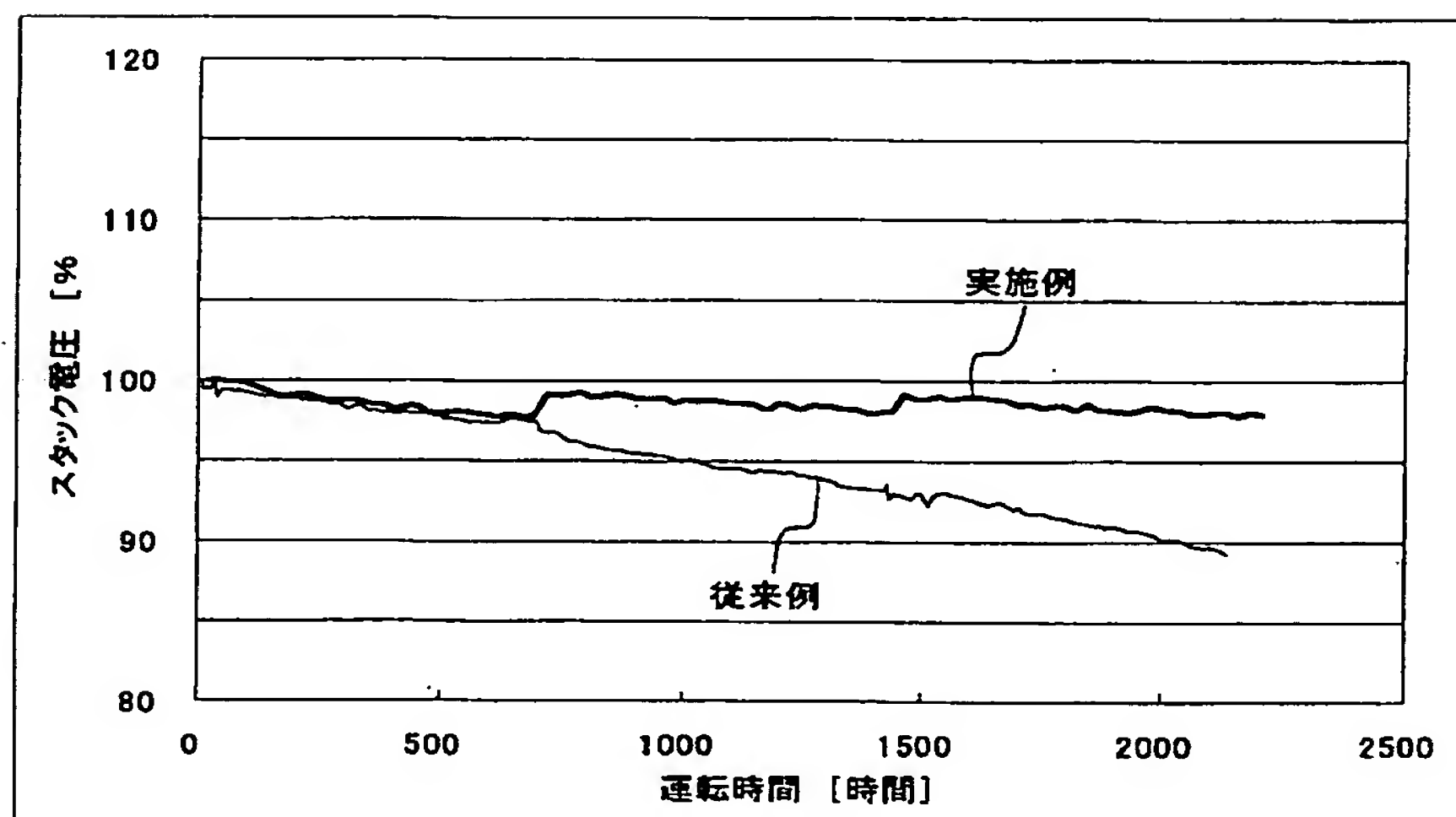
【図4】



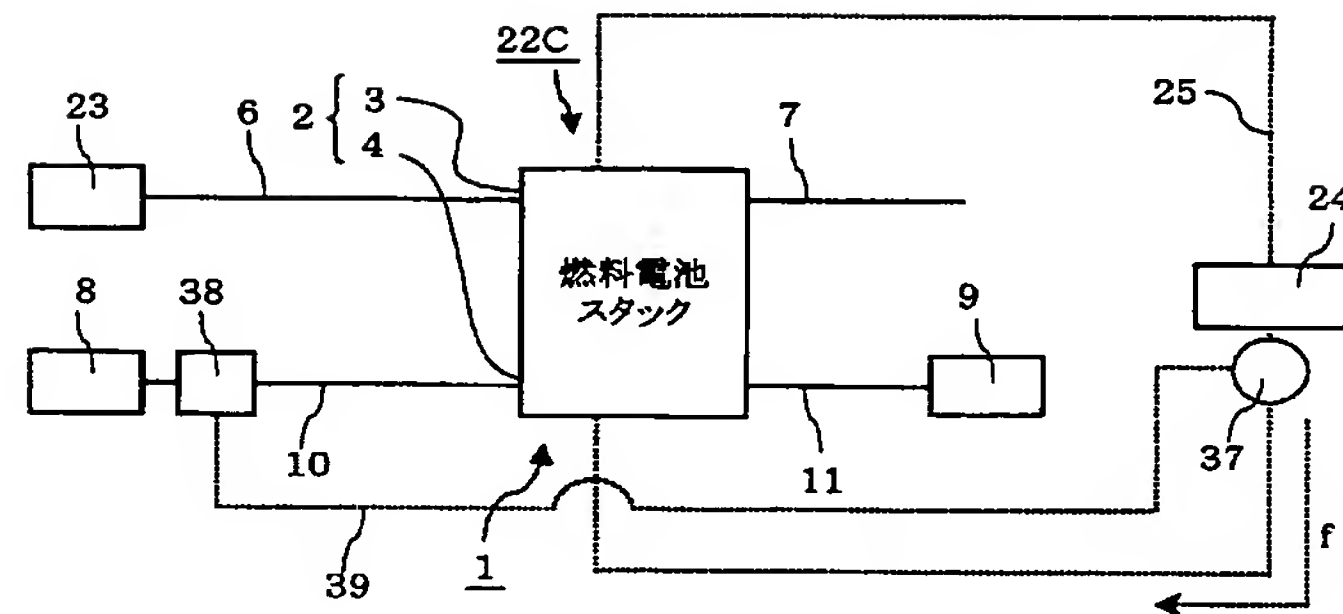
【図6】



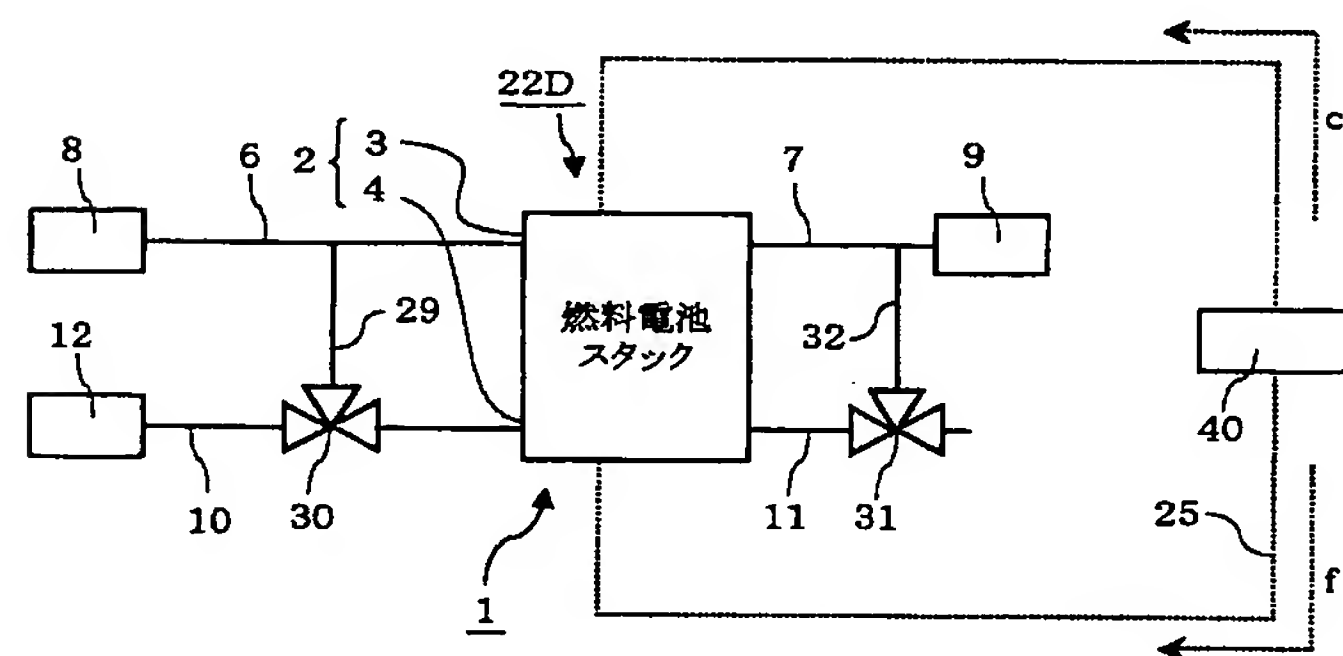
【図7】



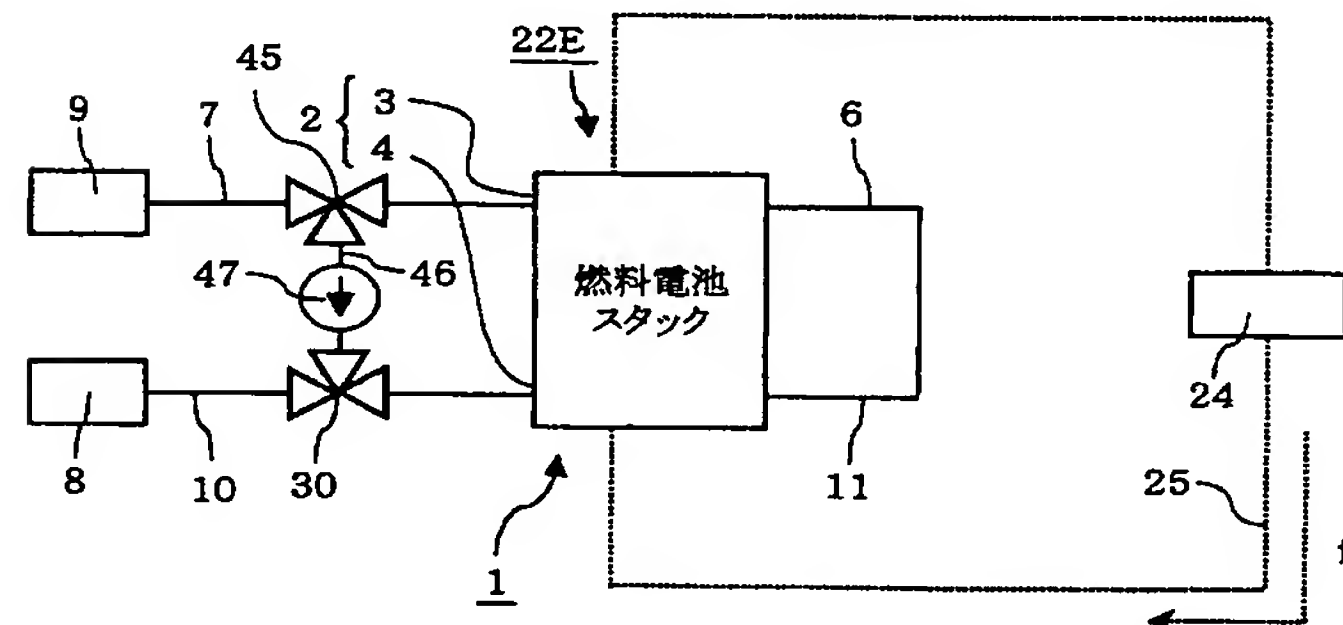
【図 8】



【図 9】



【図 11】



フロントページの続き

(72) 発明者 金子 隆之
東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 東芝イン
ターナショナルフュエルセルズ株式会社内

F ターム (参考) 5H007 BB05 BB07 CB02
5H026 AA06 CX05
5H027 AA06 DD01 MM01 MM27